

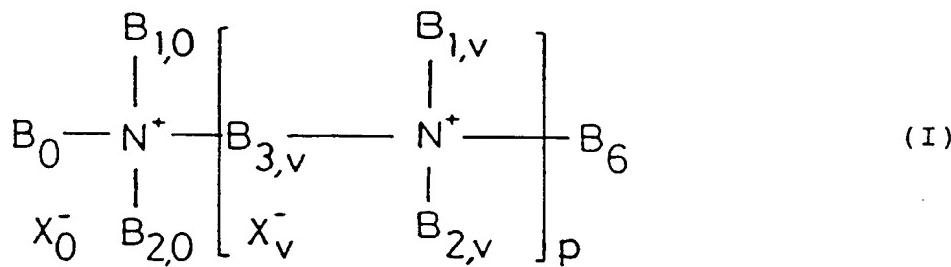


## DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIEE EN VERTU DU TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS (PCT)

(51) Classification internationale des brevets <sup>5</sup> : A01N 57/34, 57/36, C02F 1/50 // (A01N 57/34, 59/20, 59/16 A01N 33/12) (A01N 57/36 A01N 59/20, 59/16, 33/12)	A1	(11) Numéro de publication internationale: WO 91/04668 (43) Date de publication internationale: 18 avril 1991 (18.04.91)
(21) Numéro de la demande internationale: PCT/BE90/00055		(74) Mandataire: VANDERPERRE, Robert; Bureau Vander Haeghen, Avenue de la Toison d'Or 63, B-1060 Bruxelles (BE).
(22) Date de dépôt international: 9 octobre 1990 (09.10.90)		(81) Etats désignés: AT (brevet européen), AU, BE (brevet européen), CA, CH (brevet européen), DE (brevet européen), DK (brevet européen), ES (brevet européen), FR (brevet européen), GB (brevet européen), GR (brevet européen), IT (brevet européen), JP, LU (brevet européen), NL (brevet européen), NO, SE (brevet européen), US.
(30) Données relatives à la priorité: 08901081 9 octobre 1989 (09.10.89) BE		(Publiée <i>Avec rapport de recherche internationale.</i> )
(71) Déposant ( <i>pour tous les Etats désignés sauf US</i> ): FABRICOM AIR CONDITIONING S.A. [BE/BE]; Rue du Monténégro 138 à 144, B-1060 Bruxelles (BE).		
(72) Inventeur; et (75) Inventeur/Déposant ( <i>US seulement</i> ): LEGROS, Alain [BE/BE]; Rue du Docteur-Maitre 11, B-6120 Nalinnes (BE).		

(54) Title: DISINFECTANT COMPOSITION AND METHOD OF DISINFECTION

(54) Titre: COMPOSITION DESINFECTANTE ET PROCEDE DE DESINFECTION



## (57) Abstract

A composition intended for disinfecting liquids and/or surfaces or for preserving food or drink. The composition comprises at least one quaternary phosphonium compound and at least one quaternary ammonium compound of formula (I) having a molecular weight of between 1000 and 50000, preferably between 1000 and 5000. A method of disinfecting using such a composition is also described.

## (57) Abrégé

La présente invention est relative à une composition destinée à la désinfection de liquides et/ou de surfaces ou à la conservation d'aliments ou boissons, cette composition contenant au moins un composé de phosphonium quaternaire et au moins un composé d'ammonium quaternaire de formule (I) ayant un poids moléculaire compris entre 1.000 et 50.000, de préférence entre 1.000 et 5.000. L'invention est également relative à un procédé de désinfection utilisant une telle composition.

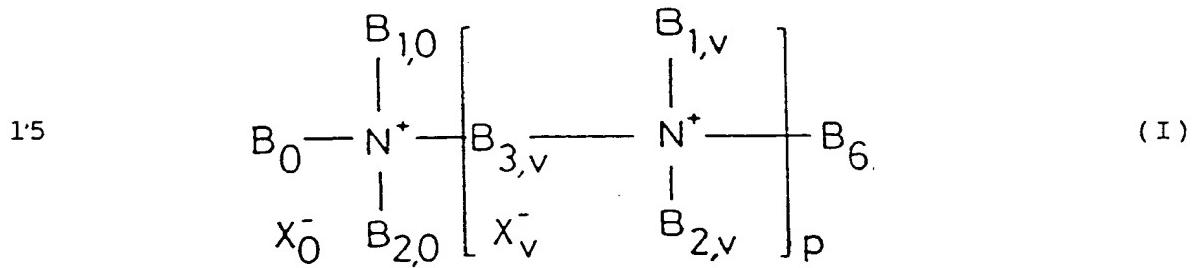
**UNIQUEMENT A TITRE D'INFORMATION**

**Codes utilisés pour identifier les Etats parties au PCT, sur les pages de couverture des brochures publient des demandes internationales en vertu du PCT.**

AT	Autriche	ES	Espagne	MC	Monaco
AU	Australie	FI	Finlande	MG	Madagascar
BB	Barbade	FR	France	ML	Mali
BE	Belgique	GA	Gabon	MR	Mauritanie
BF	Burkina Fasso	GB	Royaume-Uni	MW	Malawi
BG	Bulgarie	GR	Grèce	NL	Pays-Bas
BJ	Bénin	HU	Hongrie	NO	Norvège
BR	Brésil	IT	Italic	PL	Pologne
CA	Canada	JP	Japon	RO	Roumanie
CF	République Centrafricaine	KP	République populaire démocratique de Corée	SD	Soudan
CG	Congo	KR	République de Corée	SE	Suède
CH	Suisse	LI	Liechtenstein	SN	Sénégal
CM	Cameroun	LK	Sri Lanka	SU	Union soviétique
DE	Allemagne	LU	Luxembourg	TD	Tchad
DK	Danemark			TC	Togo
				US	Etats-Unis d'Amérique

**COMPOSITION DESINFECTANTE ET PROCEDE DE DESINFECTION****ABREGE DE L'INVENTION**

La présente invention est relative à une composition destinée à la désinfection de liquides et/ou de surfaces ou à la conservation d'aliments ou boissons, cette composition contenant au moins un composé de phosphonium quaternaire et au moins un composé d'ammonium quaternaire de formule (I) ayant un poids moléculaire compris entre 1000 et 50.000, de préférence entre 1000 et 5000.



20

L'invention est également relative à un procédé de désinfection utilisant une telle composition.

**25 L'ETAT DE LA TECHNIQUE**

Il est connu de désinfecter des liquides et/ou des surfaces au moyen de compositions contenant des composés d'ammonium quaternaire.

30

Ainsi le document WO 87/02221 décrit des compositions contenant un polymère ou copolymère obtenu par condensation d'une diamine avec un dihalogénure et des ions d'au moins un métal choisi parmi le cuivre, 5 l'argent et le manganèse.

Il est également connu d'utiliser, par exemple, par le document US-A-3 364 141, des composés de phosphonium pour le traitement d'eau industrielle, ces 10 composés agissant en tant qu'algicides, fongicides et bactéricides.

Bien que les solutions proposées dans ces documents sont acceptables, l'homme du métier a toujours 15 essayé de réduire les quantités de désinfectants nécessaires pour obtenir un même résultat de désinfection.

Ainsi le document EP-A-0 258 737 enseigne 20 une composition désinfectante contenant un phosphonium et un ammonium, à savoir du benzyl-diméthyl-alkyl ammonium, le rapport en poids entre l'ammonium et le phosphonium étant compris entre 1:9 et 9:1.

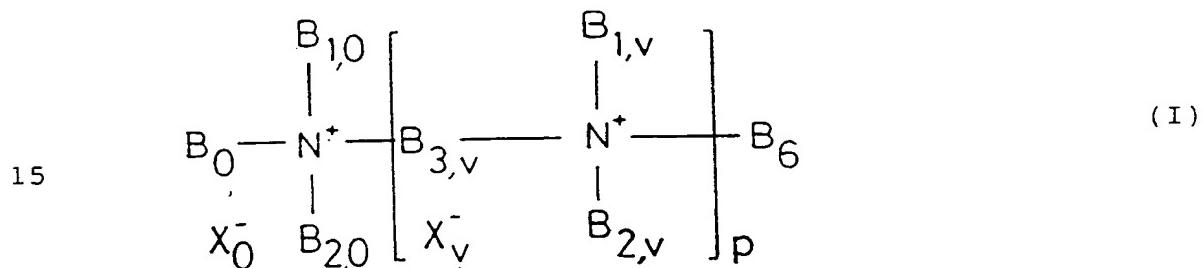
Si cette composition semble être efficace 25 à l'encontre de germes de souches cibles, il semble qu'elle ne soit que peu active pour tuer des germes de souches stressées ou des germes banaux.

Le demandeur a remarqué qu'en utilisant des 30 compositions désinfectantes contenant un phosphonium et des ammoniums particuliers, il était possible de tuer rapidement des germes banaux et des germes stressés.

DESCRIPTION DE L'INVENTION

La composition désinfectante suivant l'invention qui peut être utilisée pour la désinfection de liquides et/ou surfaces ou pour la conservation d'aliments ou boissons contient au moins un composé de phosphonium quaternaire et un composé d'ammonium quaternaire, ce dernier étant un composé de poids moléculaire compris entre 1000 et 50.000 de formule (I)

10



20 dans laquelle :

- p est un nombre entier au moins égal à 1 ;
- v est un nombre entier compris entre 1 et p ;
- 25 -  $B_0$  et  $B_6$  qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone ;
- 30 -  $B_{1,0}$ ,  $B_{2,0}$ ,  $B_{1,v}$  et  $B_{2,v}$  pour v compris entre 1 et p désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement carboxyle ou par
- 35 -

un groupement hydroxyle,  $B_{1,0}$ ,  $B_{2,0}$ ,  $B_{1,v}$  et  $B_{2,v}$  pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone,  $B_{1,v}$  et/ou  $B_{2,v}$  pouvant être reliés respectivement à  $B_{1,v+1}$  et/ou  $B_{1,v-1}$  et à  $B_{2,v+1}$  et/ou  $B_{2,v-1}$  ;

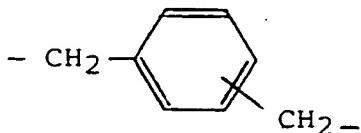
5

-  $B_{3,v}$  pour  $v$  compris entre 1 et  $p$  désigne un groupe hydrocarboné éventuellement substitué, insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe biguanide ou un groupe de formule

10

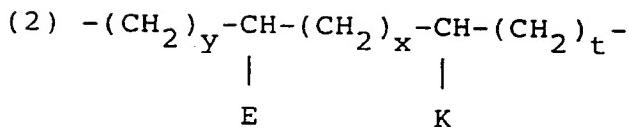
(1) o-, m- ou p-xylydène de formule :

15



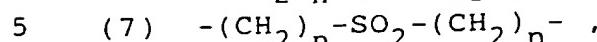
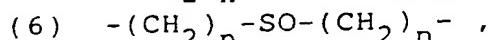
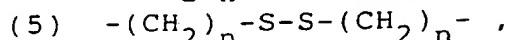
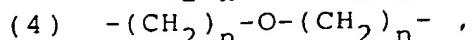
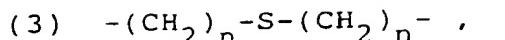
20

25

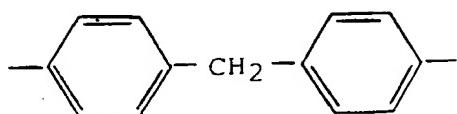


30

où  $x$ ,  $y$  et  $t$  sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de  $x + y + t$  est égale ou supérieure à 6 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de carbone ;

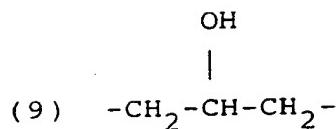


10 (8)



10

15 où n est égal à 1, 2 ou 3.



20

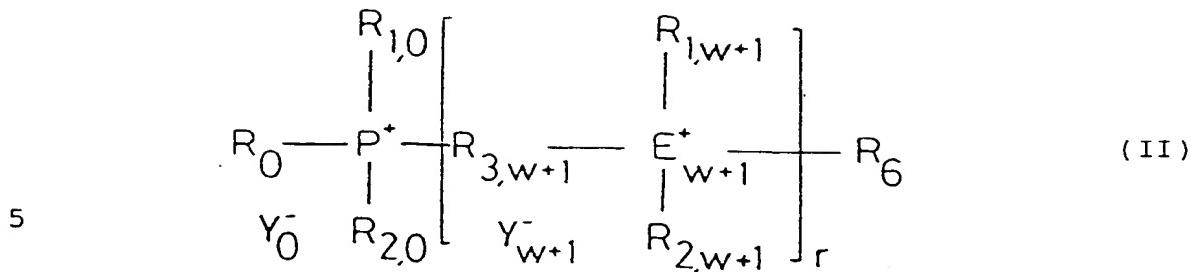
et

25  $x_0^-$  et  $x_{v+1}^-$  désignent un anion, de préférence un atome d'halogène tel qu'un atome de brome ou de chlore.

De préférence, le poids moléculaire du composé d'ammonium quaternaire est compris entre 1000 et 5000.

30

Le composé de phosphonium quaternaire répond avantageusement à la formule générale suivante :



10

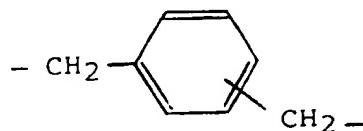
dans laquelle :

- r est un nombre entier éventuellement égal à 0 ;
- 15 - w est un nombre entier compris entre 0 et r ;
- R<sub>0</sub> et R<sub>6</sub> qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone ;
- 20 - R<sub>1,0</sub>, R<sub>2,0</sub>, R<sub>1,g+1</sub> et R<sub>2,g+1</sub> pour g compris entre 0 et r désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement hydroxyle, R<sub>1,g+1</sub> et R<sub>2,g+1</sub> pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone, R<sub>1,g+1</sub> et/ou R<sub>2,g+1</sub> pouvant être reliés respectivement à R<sub>1,g+2</sub> et/ou R<sub>1,g</sub> et à R<sub>2,g+2</sub> et/ou R<sub>2,g</sub> ;
- 25 - E<sub>3,w+1</sub> désigne un groupe hydrocarboné éventuellement insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe
- 30 -

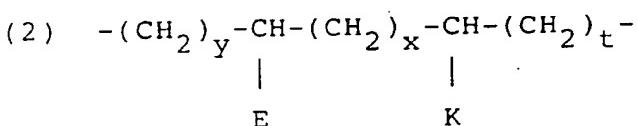
de formule :

(1) o-, m- ou p-xylylidène de formule :

5



10



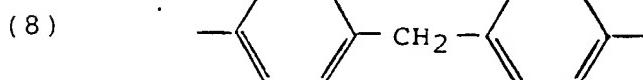
15

où x, y et t sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de x + y + t est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent de l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de carbone ;

20

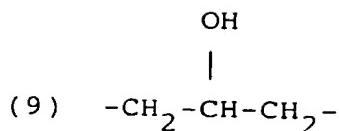
- (3)  $-(CH_2)_n - S - (CH_2)_n -$ ,
- (4)  $-(CH_2)_n - O - (CH_2)_n -$ ,
- (5)  $-(CH_2)_n - S - S - (CH_2)_n -$ ,
- (6)  $-(CH_2)_n - SO - (CH_2)_n -$ ,
- 25     (7)  $-(CH_2)_n - SO_2 - (CH_2)_n -$ ,

30



35

où n est égal à 1, 2 ou 3.



5 et

$\text{Y}_0^-$  et  $\text{Y}_{w+1}^-$  désignent un anion, de préférence un halogène.

La composition suivant l'invention contient  
10 également avantageusement un ion d'un métal choisi  
avantageusement parmi le fer, le cuivre, l'argent, l'or,  
le manganèse, le zinc et un mélange de tels ions, cet  
ion de métal permettant d'accroître encore l'efficacité  
de la composition.

15

La composition suivant l'invention contient  
de 5 à 95 % en poids d'ammonium de poids moléculaire  
supérieur à 1000 par rapport à la quantité totale de  
phosphonium et d'ammonium présents dans la composition.  
20 De préférence, la composition contient de 5 à 95 % de  
phosphonium par rapport à la quantité totale de  
phosphonium et ammonium présents dans la composition.

Selon des particularités des composés de  
25 formules I et II,  $\text{R}_0$  et/ou  $\text{R}_6$  et/ou  $\text{B}_0$  et/ou  $\text{B}_6$  sont  
des groupes hydrocarbonés éventuellement substitués et  
insaturés contenant de 16 à 22 atomes de carbone, de  
préférence 16 atomes de carbone. Ces groupes peuvent,  
par exemple, être substitués par un ou des groupes  
30 hydroxyles ou carboxyles ou par des halogènes.

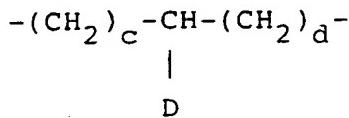
Dans des formes particulières des composés de formules (I) et (II),

- pour au moins un l compris entre 0 et p,  $B_{1,1}$  et  $B_{1,l+1}$  sont reliés entre eux et/ou  $B_{2,1}$  et  $B_{2,l+1}$  sont reliés entre eux en formant de préférence un groupe identique à  $B_{3,l+1}$ , tel qu'un groupe de formule  $-(CH_2)_2^-$ , et
- 5 - pour au moins un k compris entre 0 et r,  $R_{1,k}$  et  $R_{1,k+1}$  sont reliés entre eux et/ou  $R_{2,k}$  et  $R_{2,k+1}$  sont reliés entre eux en formant de préférence un groupe identique à  $R_{3,k+1}$  tel qu'un groupe de formule  $-(CH_2)_2^-$ .
- 10 - pour au moins un k compris entre 0 et r,  $R_{1,k}$  et  $R_{1,k+1}$  sont reliés entre eux et/ou  $R_{2,k}$  et  $R_{2,k+1}$  sont reliés entre eux en formant de préférence un groupe identique à  $R_{3,k+1}$  tel qu'un groupe de formule  $-(CH_2)_2^-$ .

15 Dans d'autres formes particulières des composés de formules (I) et (II),

- $B_{3,1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque l est un nombre pair, tandis que  $B_{3,1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque l est un nombre impair, ou inversément, et
- 20 -  $R_{3,k+1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque k est un nombre impair, tandis que  $R_{3,k+1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque k est un nombre pair, ou inversément.
- 25 -  $R_{3,k+1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque k est un nombre impair, tandis que  $R_{3,k+1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque k est un nombre pair, ou inversément.

30  $R_{3,k+1}$  et  $B_{3,1}$  dans les composés de formules (I) et (II) peuvent, par exemple, être choisis parmi les groupes de formule



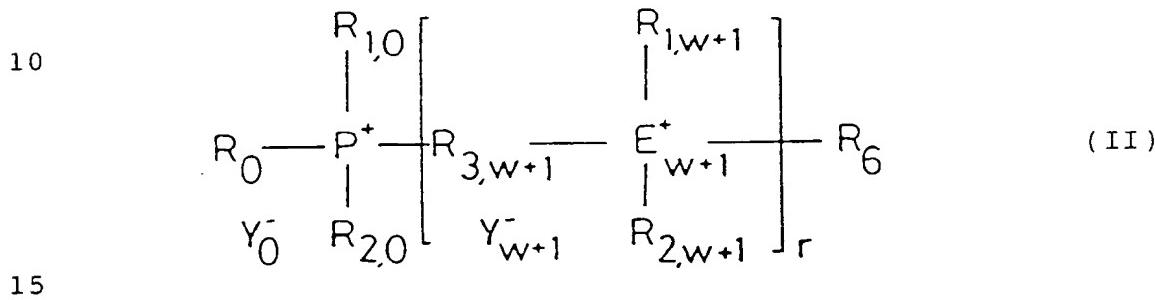
5 dans laquelle D désigne un atome d'hydrogène ou un radical  $C_{1-4}$  alkyle, c et d sont des nombres entiers inférieurs à 5 dont l'un peut avoir une valeur égale à 0, tandis que la somme c+d est au moins égale à 1 et au maximum égale à 8.

La présente invention a également pour objet

- 10 - un procédé de désinfection de liquides dans lequel on ajoute à ces liquides au moins une composition suivant l'invention ;
- 15 - un procédé de désinfection de surfaces dans lequel on met lesdites surfaces en contact avec au moins une composition suivant l'invention ;
- 20 - un procédé de conservation de boissons dans lequel on ajoute auxdites boissons une composition suivant l'invention, et
- un procédé de conservation d'aliments dans lequel on trempe lesdits aliments dans une composition suivant l'invention.

EXEMPLES DE COMPOSÉS POUR DES COMPOSITIONS  
SUIVANT L'INVENTION

Des composés de phosphonium qui peuvent être  
 5 utilisés dans les compositions suivant l'invention sont  
 des composés de formule (II)



dans laquelle  $r$ ,  $w$ ,  $R_0$ ,  $R_6$ ,  $R_{1,0}$ ,  $R_{2,0}$ ,  $R_{1,w+1}$ ,  
 20  $R_{2,w+1}$ ,  $Y_0^-$ ,  $Y_{w+1}^-$  ont les significations données  
 ci-dessous.

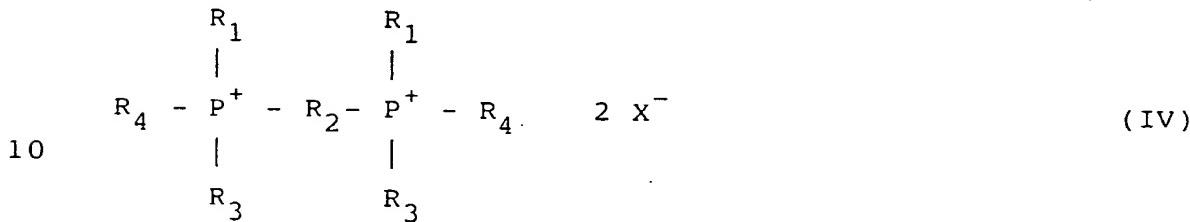
Des exemples particuliers de composés de phosphonium quaternaire sont donnés ci-après :

25 - des composés de formule



dans laquelle au moins un des symboles  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$   
 35 désigne un radical alkyle contenant plus de 6 atomes de carbone et le ou les autres symboles  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$  et  $R_4$  désignent un radical alkyle contenant de 1 à 6 atomes de

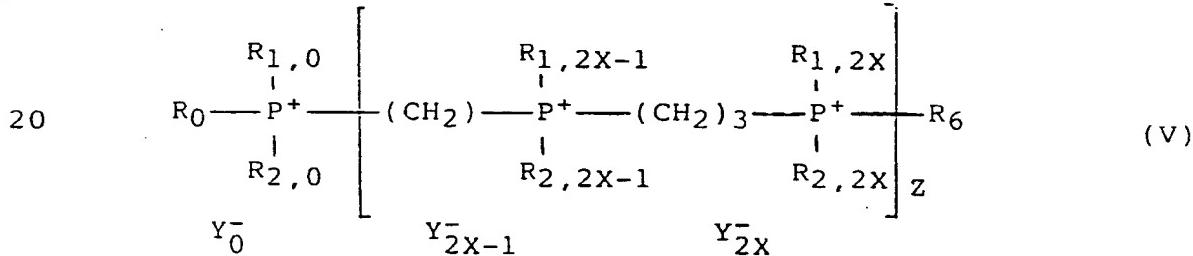
carbone ou un radical aryle monocyclique éventuellement substitué, par exemple par un radical alkyle inférieur, par un halogène ou par un groupe hydroxy, tandis que X désigne un anion choisi parmi le chlore, le brome, 5 l'iode, le bicarbonate ou le phosphate ;



dans laquelle les symboles  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$  et X ont les significations indiquées plus haut.

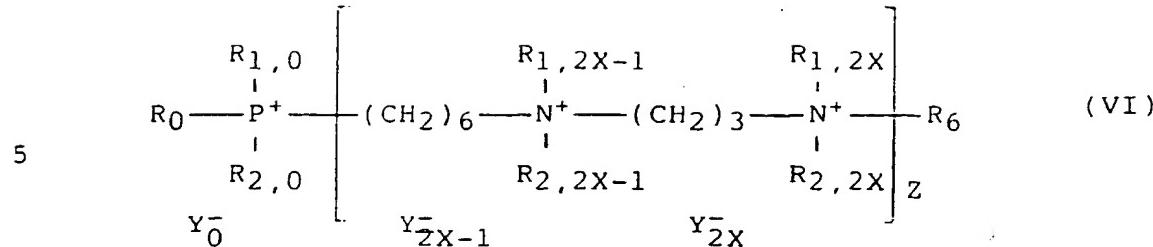
15

- des composés de formule



25 avec X compris entre 1 et Z

dans laquelle  $R_0$ ,  $R_6$ ,  $R_{1,0}$ ,  $R_{2,0}$ ,  $R_{1,2X-1}$ ,  $R_{2,2X-1}$ , 30  $R_{1,2X}$  et  $R_{2,2X}$  désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone, ou encore



10

dans laquelle  $R_0$ ,  $R_6$ ,  $R_{1,0}$ ,  $R_{2,0}$ ,  $R_{1,2X-1}$ ,  $R_{2,2X-1}$ ,  $R_{1,2X}$  et  $R_{2,2X}$  désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement hydroxyle.

20 Des composés de phosphonium de formule (III) peuvent être préparés en faisant réagir une phosphine avec un halogénure d'un composé hydrocarboné.

Ainsi le bromure de triphényl hexadécyl phosphonium ( $P_2$ ) a été préparé de la manière suivante :

25 On a mélangé 13,11 g de triphénylphosphine à 15,26 g de bromure d'hexadécane. Le réacteur a été maintenu à 110°C sous atmosphère d'argon et sous agitation.

30 Après 24 heures de réaction, le mélange était limpide et contenait plus de 90% de bromure d'hexadécyl triphényl phosphonium.

35 De manière similaire, mais en faisant réagir de la triphényl phosphine ou de la diméthyl phényl phos-

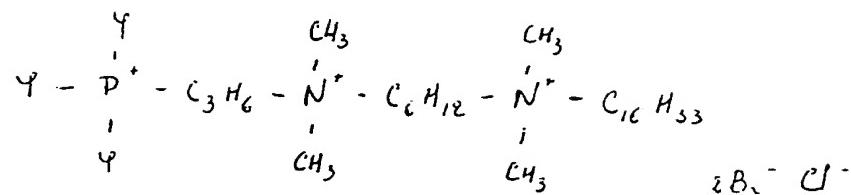
phine ou de la diéthyl phényl phosphine ou de la tripropyl phosphine ou de la diphényl hexadécyl phosphine ou de la diphényl octyl phosphine ou de la tritolyl phosphine ou de la diphényl tolyl phosphine ou de la méthyl dioctyl phosphine avec un chlorure, bromure ou iodure de dihydroxyoctadécane, d'hexadécane, d'octadécane, de docosane, d'octane, de dodécane, de toluène ou de benzène, on a préparé les phosphonium suivants :

- 10 - bromure de triphényl hexadécyl phosphonium (P2),  
- bromure de triphényl octadécyl phosphonium (P5),  
- bromure de triphényl dodécyl phosphonium (P1),  
- bromure de triéthyl dodécyl phosphonium,  
- bromure de diméthyl dodécyl phényl phosphonium,
- 15 - chlorure de triphényl benzyl phosphonium,  
- chlorure de tributyl benzyl phosphonium (P27),  
- chlorure de diméthyl dodécyl phényl phosphonium,  
- bromure de diéthyl dodécyl phényl phosphonium,  
- bromure de tripropyl dodécyl phosphonium,
- 20 - bromure de tripropyl hexadécyl phosphonium (P3),  
- bromure de diphényl dihexadécyl phosphonium (P4),  
- bromure de triphényl docosyl phosphonium (P6),  
- bromure de dodécyl tritolyl phosphonium (P13),  
- bromure de dodécyl diphényl tolyl phosphonium (P12),
- 25 - bromure de cétyl triphényl phosphonium,  
- bromure de méthyl dioctyl phényl phosphonium,  
- iodure de triéthyl dodécyl phosphonium,  
- bromure d'octadécyl  $\alpha, \omega$  bis-triphényl phosphonium (P9),
- 30 - bromure d'hexadécyl  $\alpha, \omega$  bis-triéthyl phosphonium (P7),  
- bromure de diphényl dioctyl phosphonium (P10),  
- bromure de triphényl dihydroxyoctadécyl phosphonium (P11),  
- bromure de tripropyl benzyl phosphonium (P32).

Des composés contenant plusieurs groupements phosphonium en un ou des groupements phosphonium et un ou des groupements ammonium peuvent être obtenus en faisant réagir des phosphines avec des dihalogénures, 5 des amines avec des dihalogénures avant de les faire réagir avec des phosphines, etc.

A titre d'exemple on a préparé un composé P34  
de formule

5



10

$\text{Y}$  : phényle

15

de la manière suivante :

20

On a mélangé 26,2 g de triphényl phosphine avec 15,75 g de 1,3-bromochloropropane dans 100 g d'eau. On a porté le mélange à 65°C et on a maintenu ce mélange à cette température et sous agitation pendant 3 heures.

25

On a ensuite ajouté 17,23 g de 1,6-tétraméthylhexane diamine.

30

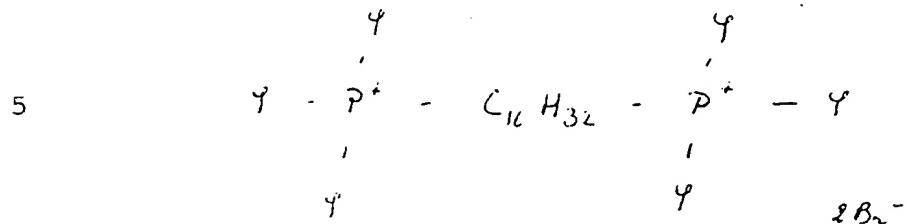
On a porté ce mélange à 121°C sous atmosphère d'argon et on a maintenu celui-ci à cette température et sous agitation pendant 16 heures.

On a enfin ajouté 30,5 g de 1-bromohexadécane et on a chauffé le mélange sous agitation à 90°C pendant 12 heures.

35

Le produit obtenu avait un poids moléculaire de 897,38 g.

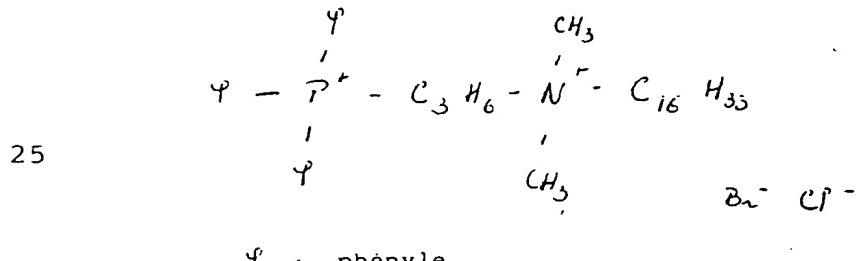
Le composé P8 de formule :



a été préparé de la manière suivante :

On a mélangé 5,24 g de triphényl phosphine avec 3,83 g de dibromo hexadécane sous atmosphère d'argon. On a porté ce mélange à une température de 120°C et on a maintenu cette température pendant 4 heures.

20 Le composé P14 de formule :



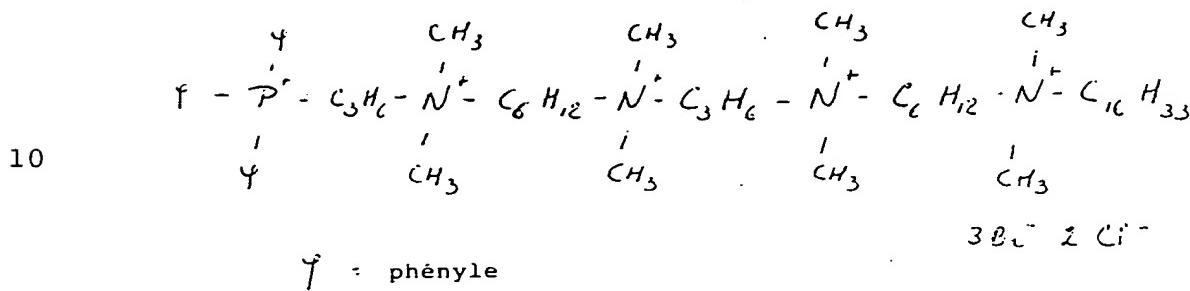
30 a été obtenu de la manière suivante :

Dans un premier temps, on a synthétisé sous atmosphère d'argon un composé intermédiaire en mélangeant 26,3 g de triphényl phosphine avec 15,75 g de bromochloropropane et en maintenant la température de ce mélange à 120°C pendant 4 heures.

Ensuite, on a fait réagir pendant 20 heures à une température de 90°C 2,62 g dudit composé intermédiaire avec 1,68 g de diméthyl hexadécyl amine.

5

Le composé P15 de formule



15

a été préparé de la manière suivante :

20

On a synthétisé sous atmosphère d'argon un composé intermédiaire de phosphonium en mélangeant 26,3 g de triphényl phosphine avec 15,75 g de bromochloropropane et en portant ce mélange à 120°C pendant 4 heures.

25

On a synthétisé en milieu aqueux un composé d'ammonium en faisant réagir pendant 4 heures à 60°C 10,34 g de N,N,N',N'-tétraméthyl hexane diamine avec 4,72 g de bromochloropropane.

30

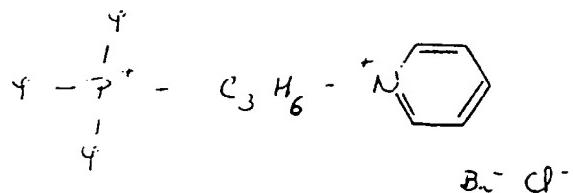
On a ensuite ajouté à ce mélange aqueux 9,16 g de bromohexadécane et on a maintenu ce mélange à une température de 90°C pendant 20 heures.

On a ainsi obtenu un mélange aqueux contenant un composé P15 de formule donnée ci-avant de poids moléculaire de 1227.

35

Le composé P16 de formule

5



$\text{C}_6\text{H}_5$  : phényle

10

a été préparé de la manière suivante :

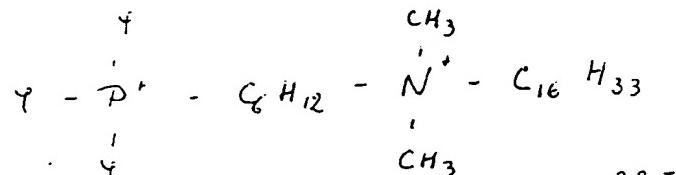
15

Sous atmosphère d'argon, on a synthétisé un composé intermédiaire en mélangeant 26,3 g de triphényl phosphine avec 15,74 g de bromochloropropane à une température de 120°C pendant 4 heures. On a ensuite ajouté à ce mélange 0,99 g de pipéridine et on a maintenu la température à 60°C pendant 2 heures.

20

Le composé P17 de formule

25



30

$\text{C}_6\text{H}_5$  : phényle

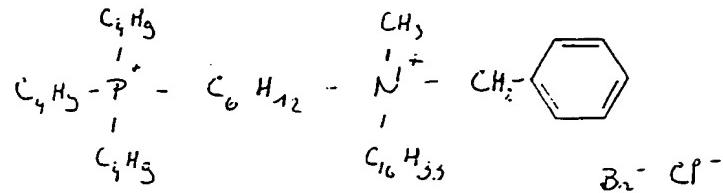
35 a été préparé de la manière suivante :

On a fait réagir pendant 2 heures à 60°C 26,95 g de diméthylhexadécyldiamine avec 24,4 g de 1,6-dibromohexane. On a ensuite fait réagir 5,14 g du produit de la première réaction avec 2,62 g de 5 triphényle phosphine à une température de 120°C pendant 2 heures sous atmosphère d'argon.

Le composé P20 de formule

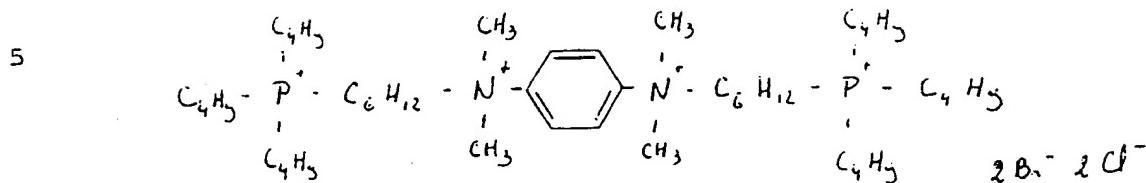
10

15



20 a été préparé en préparant un composé intermédiaire par réaction pendant 20 heures à 130°C sous atmosphère d'argon de 20,23 g de tributyl phosphine avec 19,95 g de 1-bromo-6-chloro hexane et en faisant réagir 6,03 g du composé intermédiaire avec 5,18 g de benzylméthyl hexadécyldiamine pendant 20 heures à 90°C.  
 25

## Le composé P21 de formule

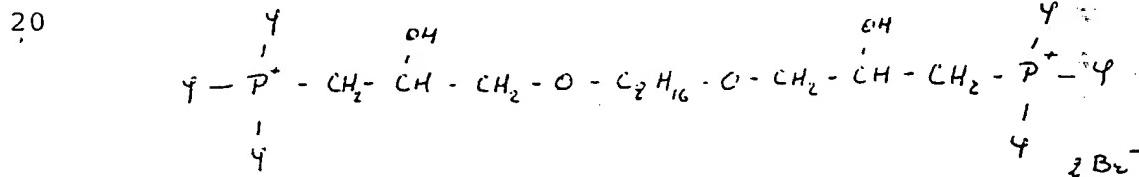


10

a été obtenu en faisant réagir 6,03 g du composé intermédiaire obtenu lors de la préparation du composé P20 avec 1,23 g de N,N,N',N'-tétraméthyl-p-phénylène diamine pendant 20 heures à 90°C.

15

## Le composé P22 de formule



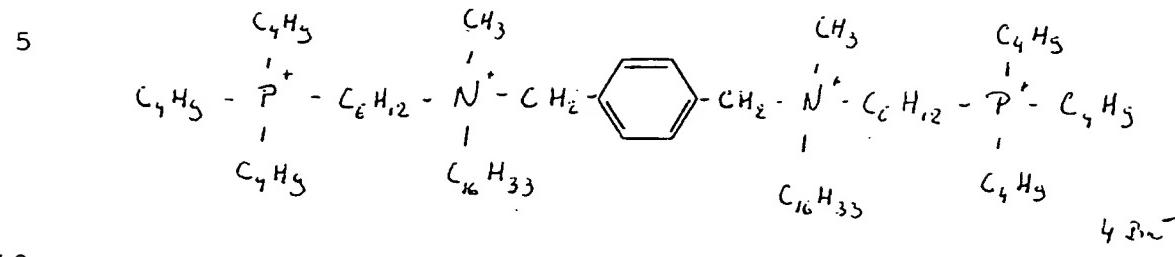
25

$\text{Ph}$  : phényle

a été préparé de la manière suivante :

30 On a fait réagir pendant 3 heures à 120°C 7,31 g de 1,8-octanediol avec 13,7 g d'épibromhydrine. Après filtration et séchage, on a fait réagir 2,1 g du produit de la réaction précédente avec 2,62 g de triphényl phosphine pendant 15 heures à 130°C sous atmosphère d'argon.

## Le composé P23 de formule :



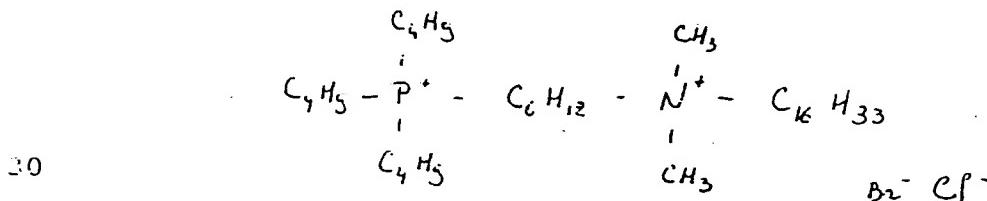
10

a été obtenu de la manière suivante :

15                    On a fait réagir pendant 15 heures à 95°C  
27,83 g de méthyl hexadécyl amine avec 10,8 g de  
dibromo-p-xylène en milieu aqueux. On a récupéré un  
produit de réaction par extraction à l'éther isopropylique.  
Après lavage à l'eau et distillation du produit,  
20                    on a fait réagir pendant 15 heures à 90°C 3,83 g de  
ce produit avec 5,02 g du composé intermédiaire utilisé  
dans la préparation du composé P20.

## Le composé P24 de formule :

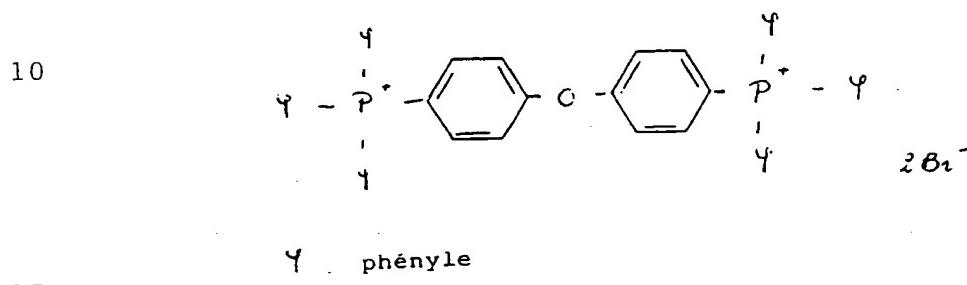
25



a été préparé en faisant réagir en milieu aqueux pendant 20 heures à 90°C 4,04 g de diméthyl hexadécyl amine avec 6,03 g du composé intermédiaire utilisé dans la préparation du composé P20.

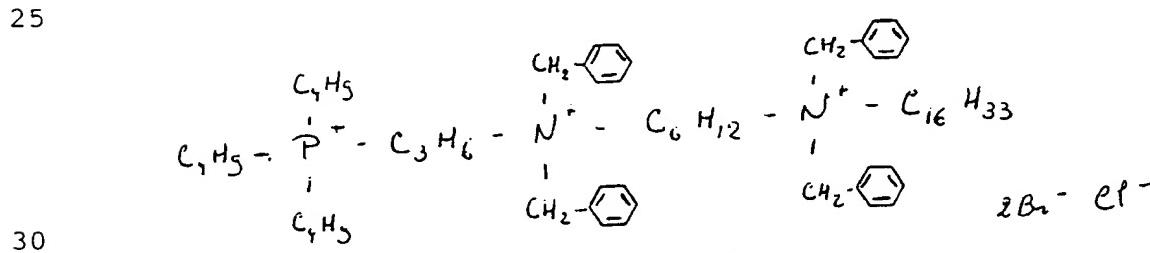
5

Le composé P25 de formule



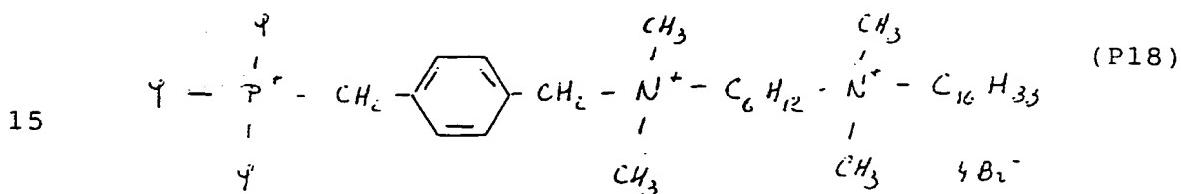
20 a été préparé en faisant réagir sous atmosphère d'argon 8,2 g de 4-bromophényl éther et 13,11 g de triphényl phosphine pendant 20 heures à une température de 130°C.

Le composé P29 de formule :



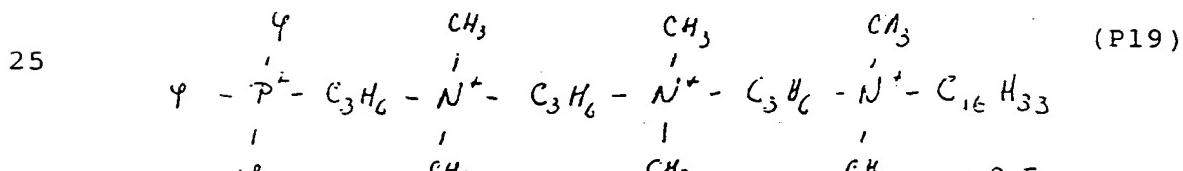
a été préparé en faisant réagir 2,7 g de bromure de tributyl-3-chloropropyl phosphonium avec 3,57 g de N,N,N',N'-tétrabenzyl hexane diamine en milieu aqueux pendant 20 heures à une température de 70°C. On a ensuite ajouté audit mélange 2,29 g de 1-bromohexadécane et on a maintenu la température du mélange à 90°C pendant 24 heures.

De manière similaire, on a préparé les composés suivants :



$\text{C}_6\text{H}_5$  : phényle

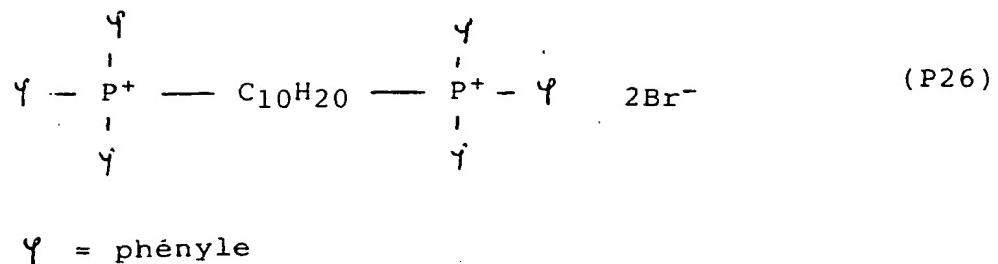
20



$\text{C}_6\text{H}_5$  : phényle

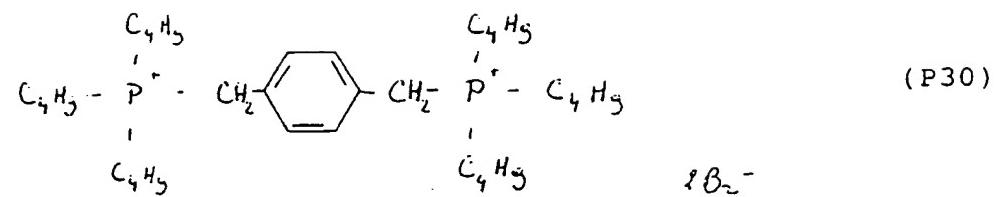
30

25



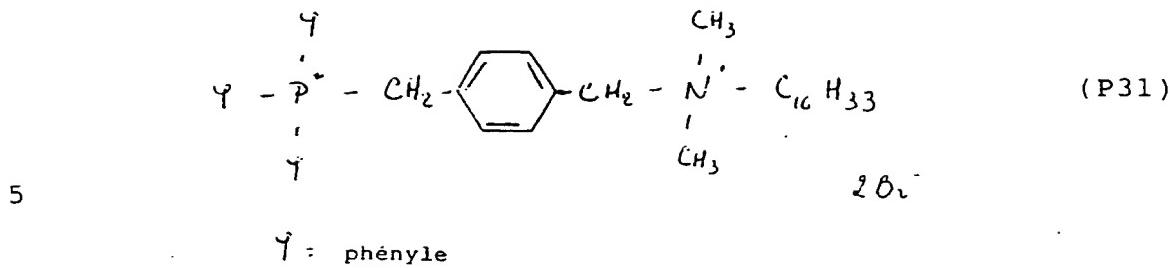
5

10

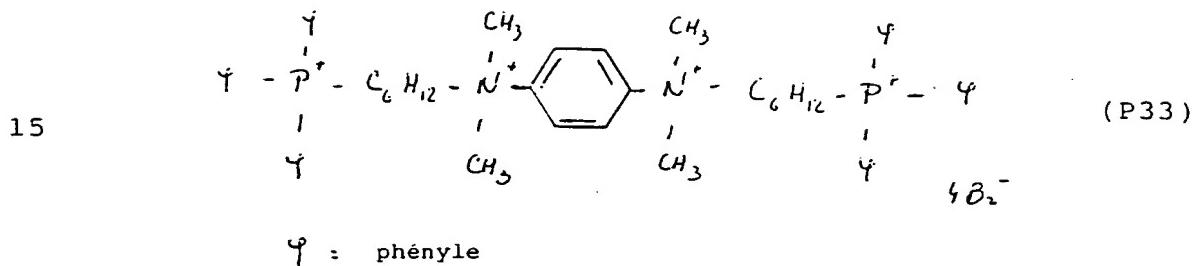


15

20

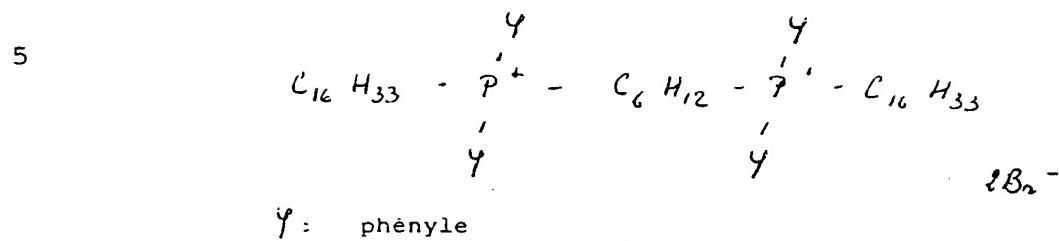


10



20

On a préparé un composé P35 de formule



10

(poids moléculaire moyen 1065 g) en mélangeant 0,909 g de 1,6-bis-(diphényl phosphine) hexane avec 1,22 g de 1-bromohexadécane et en portant ce mélange à 140°C à reflux. Après 4 heures, on a purifié le composé par cristallisation au moyen d'éther diéthylique anhydryde.

20

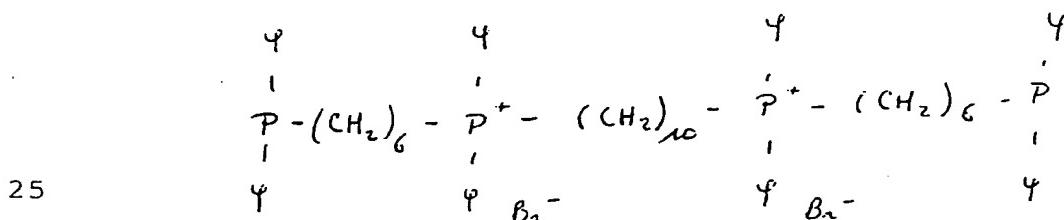
Préparation du composé phosphonium P36 :

On a mélangé dans 5 ml de  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  1,81 g de 1,6-bis-(diphénylphosphine)-hexane et 0,6 g de 1,10-di-  
 5 bromodécane. Le rapport molaire phosphine/dibromure du  
 mélange était donc d'environ 2. Après avoir agité le  
 mélange pendant 5 minutes, on a évaporé le solvant et on  
 a porté le mélange à 135°C sous atmosphère d'argon et  
 sous agitation. On a arrêté la réaction après 3 heures  
 10 et après refroidissement, on a résolu dans un peu  
 de  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  le produit de réaction. On a ensuite ajouté à  
 la solution de l'éther anhydre de manière à précipiter  
 un produit qui, par après, a été filtré et séché sous  
 vide.

15

On a ainsi obtenu avec un bon rendement, un  
 composé intermédiaire de formule

20



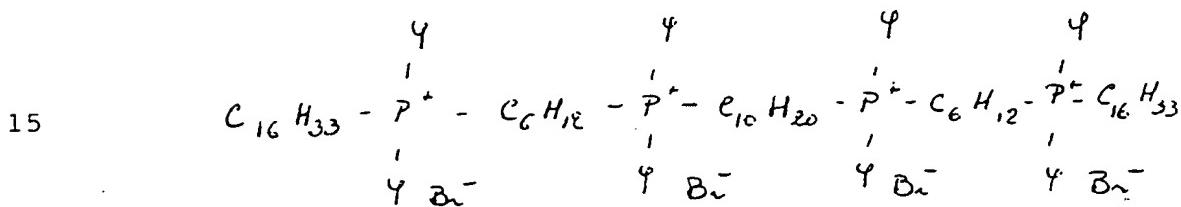
$\varphi$  : phényle

30

On a ensuite mélangé 1 mole du produit intermédiaire avec 2 moles de bromohexadécane à 145°C sous atmosphère d'argon pendant 4 heures. Après avoir refroidi le mélange, on a solubilisé ledit mélange dans 5 du CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> et on a ajouté de l'éther anhydre pour cristalliser un produit que l'on a récupéré par filtration et que l'on a séché sous vide.

On a ainsi obtenu le produit P36 de formule

10

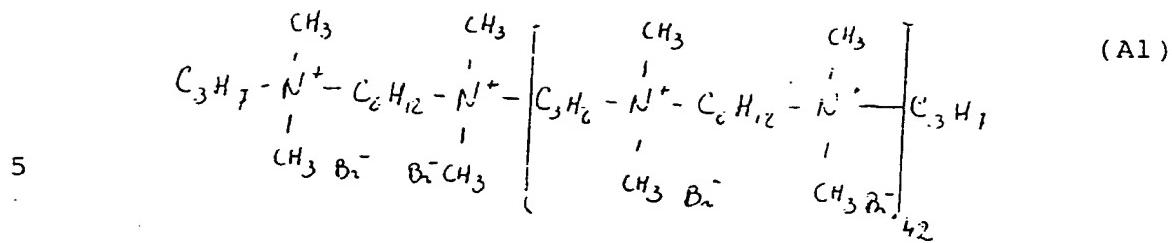


$\varphi$ . phényle

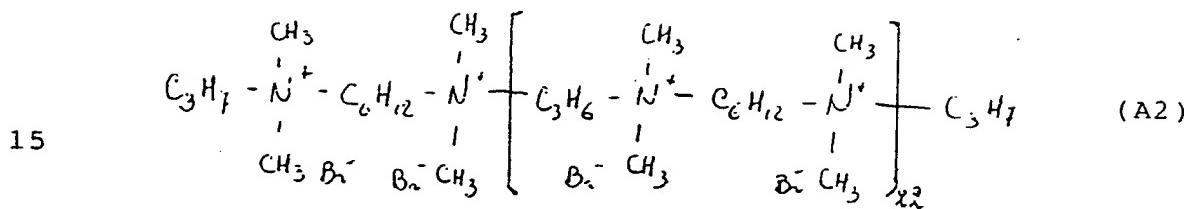
20

Des composés d'ammonium qui peuvent être utilisés dans des compositions suivant l'invention peuvent être préparés par les méthodes décrites dans les documents US-A-4 217 914, GB-2 160 538, WO-A-87 02221 et 25 WO-A-90 09405.

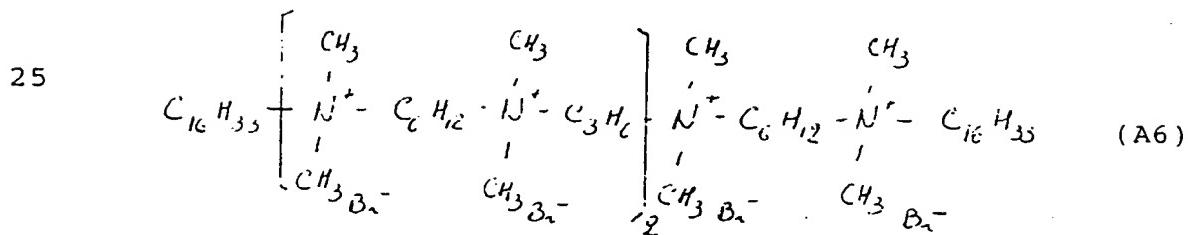
A titre d'exemples uniquement, des composés 30 d'ammonium qui peuvent être utilisés dans des compositions suivant l'invention et qui ont un poids moléculaire supérieur à 1000 sont les composés de formule suivante :



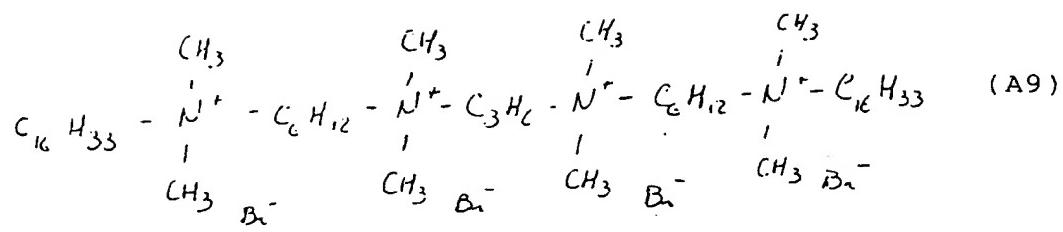
10



20



30



5

10

Le composé d'ammonium A8 utilisé dans les  
 15 exemples d'utilisation 1 à 4 a été préparé de la manière suivante :

On a mélangé 5,17 g de tétraméthylhexane diamine avec 3,03 g de 1,3-dibromopropane dans 32,9 ml  
 20 d'eau.

On a porté le mélange à 60°C et on a agité ledit mélange pendant 4 heures.

On a ensuite porté le mélange à 85°C et on a ajouté 9,16 g de bromohexadécane.

25 On a agité la solution pendant 12 heures.

On a ensuite dilué la solution obtenue avec une quantité d'eau correspondant à 20 fois le poids de la solution et on a traité ladite solution au charbon actif.

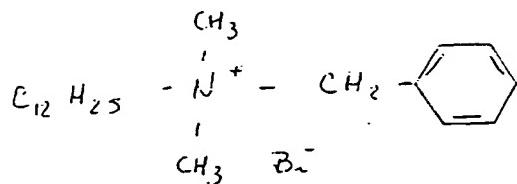
30

Le composé d'ammonium avait un poids moléculaire moyen en poids de 1157 g.

A titre de comparaison, des compositions contenant un phosphonium et un ammonium ayant un poids moléculaire inférieur à 1000 ont été préparées et testées. Ces compositions contenaient un des composés d'ammonium suivants :

10

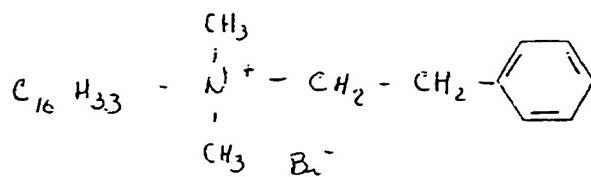
(A15)



15

(A17)

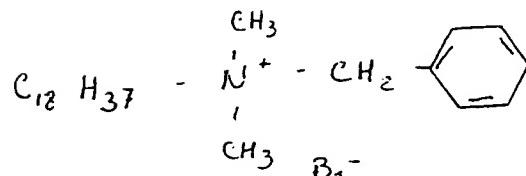
20



25

(A19)

30



EXEMPLES D'UTILISATION

Pour effectuer ces essais, on a utilisé la méthode bien connue de dilutions successives dans des tubes à essais et ensemencement sur un milieu de culture tryptone-glucose-extract agar et en utilisant un polyphosphate comme neutralisant.

Les essais de désinfection d'eau dont il est question ci-dessous ont été effectués dans de l'eau de ville ayant une dureté d'environ 35°f, préalablement filtrée sur un filtre millipore de 0,45 µ, après trois repiquages successifs de chacune des souches dans un milieu. Pour la culture des germes *Streptococcus faecalis* et *Pseudomonas stutzeri*, on a utilisé comme milieu de culture respectivement un milieu Slanetz et une solution aqueuse de 250 ml contenant 1 g/l de tryptone et 8,5 g de NaCl, tandis que pour la culture de tous les autres germes, on a utilisé un milieu gélose nutritive (OXOID CM 3).

Dans le procédé suivant l'invention pour la désinfection d'un milieu aqueux, on utilise, de préférence, au moins un composé de phosphonium à raison de 0,1 à 5 parties par million de parties du milieu aqueux à désinfecter et de 0,5 à 100 ppm d'au moins un composé d'ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000. Quant aux ions de métaux, qui peuvent être produits au sein du milieu aqueux par électrolyse ou par addition à celui-ci de sels hydrosolubles de ces métaux, tels que sulfate, chlorure, nitrate, etc., ils sont utilisés à des concentrations par exemple de 0,1 à 1,5 ppm pour les ions de cuivre et/ou de 1 à 50 ppb, plus particulièrement de 1 à 10 ppb, pour les ions d'argent.

Pour le procédé décrit ci-dessus, des compositions pour le traitement d'eaux en vue de leur désinfection peuvent se présenter sous forme d'un mélange solide ou d'une solution ou dispersion aqueuse 5 contenant au moins un composé hydrosoluble d'un métal choisi parmi le cuivre, l'argent, le manganèse et le zinc, au moins un composé de phosphonium quaternaire et au moins un composé d'ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000.

10

L'action synergique inattendue du procédé et de la composition décrites ci-dessus est illustrée par les essais comparatifs suivants, basés sur la vitesse de destruction de divers micro-organismes choisis à 15 titre d'exemples non limitatifs parmi les micro-organismes infestant couramment les eaux de piscines de natation.

Les mesures des vitesses de destruction des 20 germes de micro-organismes ont été effectuées, dans les exemples illustratifs suivants, selon la méthode AOAC (American Official Analytical Chemist, 1980, pages 58 à 68) modifiée comme suit : utilisation de produit neutralisant dans le premier tube de dilution de 25 l'échantillon de suspension bactérienne, dilutions de l'échantillon effectuées selon des facteurs de 10 en 10 jusqu'au facteur 100.000 immédiatement après la prise d'échantillons, incorporation directe dans le milieu de culture d'une quantité de l'échantillon non dilué.

30

Par germes stressés dans les exemples d'utilisation suivants, on entend des germes qui, avant leur utilisation, n'ont pas été repiqués dans le milieu de culture à trois reprises toutes les 24 heures. De tels 35 germes présentent une résistance accrue aux agents bactéricides.

Exemple 1

Souche bactérienne : *Staphylococcus aureus* ATCC 6538

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F\*) filtrée

5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration :  $1.10^6$  germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé :

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium P2

10 Le composé d'ammonium quaternaire utilisé avait la formule A8.

\* °F = ° français

15   Vitesse de destruction des germes bactériens		
20   Quantité et nature des ingrédients ajoutés		% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
	- 1 ppm ions cuivre	95
	- 2 ppm de composé	
25	d'ammonium +	
	1 ppm ions cuivre	0,0001
	- 1,9 ppm de composé	
	d'ammonium +	
	0,1 ppm de composé	
30	de phosphonium +	
	1 ppm ions cuivre	0,00000
	- 0,1 ppm de composé	
	de phosphonium +	
	1 ppm ions cuivre	0,12
35		

Exemple 2

Souche bactérienne : Escherichia coli ATCC 11229

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$0,95 \cdot 10^6$  germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé :

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium P2

10 Composé d'ammonium quaternaire utilisé : de formule A8

Vitesse de destruction des germes bactériens		
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
15		
20	- 1 ppm ions cuivre + 2 ppm de composé d'ammonium	0,04
25	- 1 ppm ions cuivre + 1,9 ppm de composé d'ammonium + 0,1 ppm de composé de phosphonium	0,004
30	- 1 ppm ions cuivre + 1,8 ppm de composé d'ammonium + 0,2 ppm de composé de phosphonium	0,00002

Exemple 3

Souche bactérienne : Pseudomonas aeruginosa ATCC 17939

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
sur filtre Millipore 0,45 µ

5

Concentration initiale en germes :

$1,3 \cdot 10^6$  germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé :

bromure de triphényl hexadécy1 phosphonium P2

10 Composé d'ammonium quaternaire utilisé : de formule A8

Vitesse de destruction des germes bactériens		
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
20	- 1 ppm ions cuivre + 2 ppm de composé d'ammonium	0,005
25	- 1 ppm ions cuivre + 1,9 ppm de composé d'ammonium + 0,1 ppm de composé de phosphonium	0,0008
30	- 1 ppm ions cuivre + 1,8 ppm de composé d'ammonium + 0,2 ppm de composé de phosphonium	0,00005

Exemple 4

Souche bactérienne : Acinetobacter lwoffii  
 Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
 5 sur filtre Millipore 0,45 µ  
 Concentration initiale en germes :  
 $1.10^6$  germes par ml  
 Composé de phosphonium quaternaire utilisé :  
 bromure de triphényl hexadécyl phosphonium P2  
 10 Composé d'ammonium quaternaire utilisé : de formule A8

Vitesse de destruction des germes bactériens		
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
15		
20	- 1 ppm ions cuivre + 2 ppm de composé d'ammonium	0,03
25	- 1 ppm ions cuivre + 1,9 ppm de composé d'ammonium + 0,1 ppm de composé de phosphonium	0,005
30	- 1 ppm ions cuivre + 1,8 ppm de composé d'ammonium + 0,2 ppm de composé de phosphonium	0,0002

Exemple 5Souche bactérienne : *Pseudomonas stutzeri*

(souche isolée d'une piscine)

5 Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

90.10<sup>5</sup> germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après temps de contact	%
10			
15			
20	1,9 ppm de composé ammonium A9 + 0,1 ppm de composé phosphonium P2	90 minutes 24 heures	8 0,00003
25	exemple comparatif		
	1,9 ppm de composé ammonium A16 + 0,1 ppm de composé phosphonium P2	90 minutes 24 heures	41 0,00013
30			

Exemple 6

Souche bactérienne : *Proteus vulgaris* (ATCC 13315)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

3.000.000 germes par ml

10

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
		après un temps de contact	
		de x minutes	
		x minutes	%
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés		
20	2 ppm de composé ammonium A8 + 1 ppm Cu	10	0,02
		15	0,0003
25	1,8 ppm de composé ammonium A8 + 0,2 ppm de composé phosphonium P2 + 1 ppm Cu	10	0,0004
		15	0,00004

30

Exemple comparatif 7

Souche bactérienne : *Proteus vulgaris* (ATCC 13315)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

3.000.000 germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes	x minutes %
20	2 ppm de composé ammonium A15 + 1 ppm Cu	10 15	0,3 0,09
25	1,8 ppm de composé ammonium A15 + 0,2 ppm de composé phosphonium P2 + 1 ppm Cu	10 15	6,2 2,2

La comparaison des exemples 6 et 7 montre clairement que l'utilisation combinée d'un phosphonium et d'un ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000 (1156) permet une destruction beaucoup plus rapide que celle obtenue en 5 utilisant le même composé de phosphonium et un ammonium de poids moléculaire inférieur à 1000 (385). Seul un effet de synergie dû à la présence du composé phosphonium existait pour la destruction de la souche *Proteus vulgaris* lorsqu'on utilisait un composé 10 d'ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000.

Exemple 8

Souche bactérienne : *Proteus vulgaris* (ATCC 13315)  
 Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée.  
 5 sur filtre Millipore 0,45 µ  
 Concentration initiale en germes :  
 700.000 germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
10			
15			
20	suivant l'invention :		
	1,8 ppm du composé ammonium A9 + 0,2 ppm du composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5	0,0003
25			
	Exemple comparatif :		
	1,8 ppm du composé ammonium A15 + 0,2 ppm du composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5	0,13
30			
	1,8 ppm du composé ammonium A17 + 0,2 ppm du composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5	0,1
35			

Exemple 9

Souche bactérienne : *Pseudomonas stutzeri* (germe isolé d'une piscine et identifié par le Laboratoire SIMON de 5 Bierges, Belgique).

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

5.000.000 germes par ml

10

Vitesse de destruction des germes bactériens			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
20	2 ppm de composé ammonium A9 + 1 ppm Cu.	30	18
25	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	30	0,48
30	2 ppm de composé ammonium A15 + 1 ppm Cu	30	74
35	1,8 ppm de composé ammonium A15 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	30	64

Ce tableau montre clairement l'effet de synergie qui existe pour la destruction de *Pseudomonas stutzeri* lorsqu'on a utilisé un composé de phosphonium et un composé ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000,  
5 et qu'un tel effet de synergie n'existe pas lorsque le poids moléculaire du composé ammonium (A15) est inférieur à 1000.

Exemple 10Souche bactérienne : *Pseudomonas aeruginosa* (ATCC 10145)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée

5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

64.10<sup>5</sup> germes par ml

## 10 | ... Vitesse de destruction des germes bactériens

	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes
	x minutes	%
20	2 ppm composé ammonium A9	30 0,88
25	1,8 ppm composé ammonium A9 + 0,2 ppm composé phosphonium P2	30 0,078
30	2 ppm composé ammonium A9 + 1 ppm Cu	30 0,018
35	1,8 ppm composé ammonium A9 + 0,2 ppm composé phosphonium P2 + 1 ppm Cu	30 0,001
	2 ppm composé ammonium A16	30 15
	1,8 ppm composé ammonium A16 + 0,2 ppm composé phosphonium P2	30 15

Ce tableau montre d'une part l'effet de synergie lors de l'utilisation simultanée d'un composé d'ammonium d'un poids moléculaire supérieur à 1000 et d'un composé phosphonium et que cet effet de synergie est encore amplifié grâce à l'utilisation d'un ion d'un métal, à savoir le cuivre.

Exemple 11

Souche bactérienne : Klebsiella pneumoniae (ATCC 13833)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$24 \cdot 10^5$  germes par ml

10

Vitesse de destruction des germes bactériens

15

Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes
x minutes	%

20

- 2 ppm de composé phosphonium P3	5	82
-----------------------------------	---	----

- 2 ppm de composé ammonium A6	5	44
--------------------------------	---	----

25

- 1,8 ppm de composé ammonium A6 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	5	17
--	---	----

- 2 ppm de composé ammonium A15	5	90
---------------------------------	---	----

30

- 2 ppm de composé ammonium A16	5	99
---------------------------------	---	----

- 1,8 ppm de composé ammonium A15 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	5	90
---	---	----

35

- 1,8 ppm de composé ammonium A16 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	5	82
---	---	----

Dans cet exemple, la bactérie a été stressée, puisqu'avant son emploi, elle n'a été repiquée qu'une seule fois.

- 5 Les résultats de cet exemple montrent clairement que seule une destruction rapide des germes de cette bactérie stressée peut être obtenue par l'utilisation simultanée d'un composé phosphonium et d'un composé d'ammonium ayant un poids moléculaire supérieur à 1000.

Exemple 12

Souche bactérienne : Escherichia coli (ATCC 11229)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$35 \cdot 10^5$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
10	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
15	- 2 ppm de composé ammonium A9 + 1 ppm Cu	5	0,1
20	- 2 ppm de composé phosphonium P30 + 1 ppm Cu	5	100
25	- 2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5	89
30	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P30 + 1 ppm Cu	5	0,003
35	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5	0,01

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
5			
10	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P17 + 1 ppm Cu	5	0,02
15	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P28 + 1 ppm Cu	5	0,01
20	- 1,8 ppm de composé ammonium A15 (poids moléculaire <1000) + 0,2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5	47
25	- 1,8 ppm de composé ammonium A16 (poids moléculaire <1000) + 0,2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5	12
30			

Ce tableau montre que les composés phosphonium P3 et P30 n'ont aucune efficacité pour détruire, en combinaison avec des ions Cu, des germes d'Escherichia coli, mais qu'ils permettent, lorsqu'ils sont utilisés dans des compositions contenant au moins un composé ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000, d'accroître l'efficacité dudit composé ammonium.

Exemple 13

Souche bactérienne : Escherichia coli (ATCC 11229)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$35 \cdot 10^5$  germes par ml

10

## Vitesse de destruction des germes bactériens

15

Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes
--	---

20

- 3 ppm de composé ammonium A1 + 1 ppm Cu	5 0,35
---	--------

25

- 3 ppm de composé ammonium A2 + 1 ppm Cu	5 0,12
---	--------

30

- 2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5 89
--	------

35

- 2,7 ppm de composé ammonium A1 + 0,3 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5 0,029
---	---------

- 2,7 ppm de composé ammonium A2 + 0,3 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5 0,0025
---	----------

- 2,7 ppm de composé ammonium A2 + 0,3 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	5 0,005
---	---------

Ce tableau montre que l'action des compositions contenant un composé ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000 pour détruire les germes d'*Escherichia coli* peut être améliorée en ajoutant auxdites 5 compositions un composé phosphonium, composé qui semble être inactif en tant que tel.

Exemple 14

Souche bactérienne : Salmonella (LMG 326)

5 (LMG Culture Collection, Laboratorium voor Micro-  
biologie, Rijksuniversiteit Gent, K.L. Ledeganck-  
straat 35, B-9000 GENT, Belgique)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

10  $18 \cdot 10^5$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes	
		après un temps de contact de x minutes	x minutes
20	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P2	20	0,4
25	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	20	0,1
30	- 1,5 ppm de composé ammonium A9 + 0,5 ppm de composé phosphonium P3	30	0,85
35	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P30	20	0,22

Vitesse de destruction des germes bactériens			
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	x minutes %
5			
10			
	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P24	20	0,4
15	- 2,25 ppm de composé ammonium A2 + 0,75 ppm de composé phosphonium P3	30	1,02
	- 1,5 ppm de composé ammonium A7 + 0,5 ppm de composé phosphonium P3	30	0,58
20	- 1,5 ppm de composé ammonium A16 (poids moléculaire <1000) + 0,5 ppm de composé phosphonium P3	30	18,75
25	- 1,8 ppm de composé ammonium A16 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	20	12
	- 1,8 ppm de composé ammonium A15 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	20	79
30			

Exemple 15

Souche bactérienne : Escherichia coli (ATCC 11229)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée

5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$115 \cdot 10^4$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
	- 2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	10	0,7
20	- 2 ppm de composé ammonium A9 + 1 ppm Cu	10	0,7
	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de	10	0,05
25	composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu		
	- 0,5 ppm de composé ammonium A9 + 1,5 ppm de	10	0,04
	composé phosphonium P3 +		
30	1 ppm Cu		
	- 2 ppm de composé ammonium A16 (poids moléculaire <1000) + 1 ppm Cu	10	30
35			

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
5			
10	- 1,8 ppm de composé ammonium A16 + 0,2 ppm de composé phosphonium P2 + 1 ppm Cu	10	42
15	- 0,5 ppm de composé ammonium A16 + 1,5 ppm de composé phosphonium P2 + 1 ppm Cu	10	18
20			

Cet exemple montre que seul un effet de synergie est observé lorsqu'on utilise une composition contenant un composé phosphonium et un composé ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000.

Exemple 16

Souche bactérienne : Escherichia coli stressée (deux repiquages de la souche avant son utilisation)

5 Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$18 \cdot 10^5$  germes par ml

10

Vitesse de destruction des germes bactériens			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes	
		x minutes	%
20	- 2 ppm de composé ammonium A7 + 1 ppm Cu	15	52
	- 2 ppm de composé phosphonium P29 + 1 ppm Cu	15	100
25	- 1,8 ppm de composé ammonium A7 + 0,2 ppm de composé phosphonium P29 + 1 ppm Cu	15	2,07
	- 0,5 ppm de composé ammonium A7 + 1,5 ppm de composé phosphonium P29 + 1 ppm Cu	15	5,25
30			

Exemple 17

Souche bactérienne : *Staphilococcus hominis*

5 (souche isolée d'une eau d'une piscine et identifiée par le Laboratoire SIMON, 10 vieux chemin du Poète, Bierges, Belgique)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

10  $24 \cdot 10^5$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
15	- 2 ppm de composé ammonium A9	5	0,0067
	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P32	5	0,00067
20	- 3 ppm de composé ammonium A2	5	0,039
	- 2,7 ppm de composé ammonium A2 + 0,3 ppm de composé phosphonium P3	5	0,001
25	- 1,8 ppm de composé ammonium A15 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	5	0,02
	- 1,8 ppm de composé ammonium A16 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	5	3,9
30			
35			

	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
15	- 2 ppm de composé ammonium A9	5	0,0067
	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P32	5	0,00067
20	- 3 ppm de composé ammonium A2	5	0,039
	- 2,7 ppm de composé ammonium A2 + 0,3 ppm de composé phosphonium P3	5	0,001
25	- 1,8 ppm de composé ammonium A15 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	5	0,02
	- 1,8 ppm de composé ammonium A16 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	5	3,9
30			
35			

Cet exemple montre que seule une bonne destruction des souches est obtenue grâce à l'utilisation d'un composé d'ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000 et d'un composé de phosphonium.

Exemple 18

Souche bactérienne : *Staphilococcus epidermidis*

5 (souche isolée d'une eau de piscine et identifiée par le Laboratoire SIMON, 10 vieux chemin du Poète, Bierges, Belgique)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée

sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

10  $79 \cdot 10^3$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes	
		après un temps de contact	x minutes
20		x minutes	%
25	3 ppm de composé ammonium A2	5	4
	2,7 ppm de composé ammonium A2 + 0,3 ppm de composé phosphonium P3	5	0,3

30

Exemple 19

Souche bactérienne : Escherichia coli (ATCC 11229)

(germes stressés - deux repiquages avant son  
5 utilisation)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$20 \cdot 10^5$  germes par ml

10

Vitesse de destruction des germes bactériens			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
20	2 ppm de composé ammonium A9 + 1 ppm Cu	10	8,5
25	2 ppm de composé ammonium A6 + 1 ppm Cu	10	5,4
	2 ppm de composé phosphonium P30 + 1 ppm Cu	10	63
30	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P30 + 1 ppm Cu	10	0,1
35			

Vitesse de destruction des germes bactériens			
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	x minutes %
5			
10	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	10	0,025
15	1,8 ppm de composé ammonium A6 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	10	0,1
20	1,8 ppm de composé ammonium A6 + 0,2 ppm de composé phosphonium P30 + 1 ppm Cu	10	0,1
25	+ 1 ppm Cu		

Cet exemple montre que le remplacement de 0,2 ppm d'un composé ammonium de poids moléculaire > 1000 par un composé phosphonium permet d'accroître l'efficacité de la composition d'un facteur supérieur à 80, alors que ledit composé phosphonium en combinaison avec du cuivre est inefficace.

Exemple 20

Souche bactérienne : *Proteus vulgaris* (ATCC 13315)  
 Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
 sur filtre Millipore 0,45 µ  
 Concentration initiale en germes :  
 $110 \cdot 10^4$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
20	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	1      5      10      15	32      0,1      0,004      0,00009
25	1,8 ppm de composé ammonium A15 (poids moléculaire < 1000) + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	1      5      10      15	100      93      68      45
30			

Ce tableau montre l'efficacité d'une composition suivant l'invention, c'est-à-dire l'importance d'utiliser un composé phosphonium en combinaison avec un composé d'ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000.

Exemple 21

Souche bactérienne : Escherichia coli (ATCC 11229)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée

5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$27 \cdot 10^5$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
10	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes	
		après un temps de contact de x minutes	x minutes %
15	3 ppm de composé ammonium A2 + 1 ppm Cu	15	32
20	3 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	15	98
25	3 ppm de composé phosphonium P30 + 1 ppm Cu	15	59
30	2,7 ppm de composé ammonium A2 + 0,3 ppm de composé phosphonium P3 + 1 ppm Cu	15	6

Vitesse de destruction des germes bactériens			
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	x minutes %
5			
	2,3 ppm de composé ammonium A2 + 0,7 ppm de composé phosphonium P3 +	15	2
10	1 ppm Cu		
	1,5 ppm de composé ammonium A2 + 1,5 ppm de composé phosphonium P3 +	15	0,08
15	1 ppm Cu		
	0,7 ppm de composé ammonium A2 + 2,3 ppm de composé phosphonium P3 +	15	0,2
20	1 ppm Cu		
	0,3 ppm de composé ammonium A2 + 2,7 ppm de composé phosphonium P3 +	15	0,2
25	1 ppm Cu		
	2,7 ppm de composé ammonium A2 + 0,3 ppm de composé phosphonium P30 +	15	1,5
30	1 ppm Cu		
	1 ppm Cu		
35			

Vitesse de destruction des germes bactériens			
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	x minutes %
5			
10			
	1,5 ppm de composé ammonium A2 + 1,5 ppm de composé phosphonium P30 +	15	0,16
15	1 ppm Cu		
	0,3 ppm de composé ammonium A2 + 2,7 ppm de composé phosphonium P30 +	15	0,18
20	1 ppm Cu		

25 Cet exemple montre que la quantité d'ammonium et la quantité de phosphonium présentes dans la composition suivant l'invention peuvent varier dans une large gamme.

Exemple 22

Souche bactérienne : *Proteus vulgaris* (ATCC 13315)

(germe stressé - deux repiquages de la souche  
5 avant son utilisation)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$28 \cdot 10^5$  germes par ml

10

Vitesse de destruction des germes bactériens			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
20	2 ppm du composé ammonium A9	10	0,012
25	2 ppm du composé phosphonium P3	10	65
30	1 ppm du composé ammonium A9 + 1 ppm du composé phosphonium P3	10	0,001

Exemple 2:

Souche bactérienne : *Pseudomonas stutzeri*

(souche isolée d'une eau de piscine et identifiée

5 par le Laboratoire SIMON, 10 vieux chemin du Poète,  
Bierges, Belgique)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

10  $26 \cdot 10^5$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens		
		% de bactéries restantes
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes
20	x minutes	%
25	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P20	60 0,06
30	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P26	60 0,061
35	- 1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P23	60 0,07
	- 1,8 ppm de composé ammonium A16 (poids moléculaire < 1000) + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	60 1,8

Ce tableau montre que le composé phosphonium de la composition suivant l'invention peut être un polyphosphonium ou un composé phosphonium ammonium.

Exemple 24

Souche bactérienne : Escherichia coli (ATCC 11229)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$186 \cdot 10^4$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
		après un temps de contact	
		de x minutes	
		x minutes	%
10			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés		
20	1,8 ppm de composé ammonium A16 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	10	79
25	1,8 ppm de composé ammonium A9	10	2,2
30	0,2 ppm de composé phosphonium P3	10	81
35	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	10	0,14

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
		après un temps de contact	
		de x minutes	
		x minutes	%
5	Quantité et nature des ingrédients ajoutés		
10	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P20	10	0,22
15	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P23	10	0,14
20	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P26	10	0,17
25	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P21	10	0,28

30 L'action remarquable des compositions suivant l'invention par rapport à l'action d'un ammonium seul, d'un phosphonium seul ou de la combinaison ammonium de poids moléculaire inférieur à 1000 - phosphonium ressort clairement de ce tableau.

Exemple 25

Souche bactérienne : *Pseudomonas stutzeri*

5 (souche isolée d'une eau de piscine et identifiée  
par le Laboratoire SIMON, 10 vieux chemin du Poète,  
Bierges, Belgique)

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

10  $25 \cdot 10^5$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après un temps de contact de x minutes	x minutes %
15	1,8 ppm de composé ammonium A16 ( poids moléculaire < 1000 )	60	4,2
20	1,8 ppm de composé ammonium A9	60	0,38
25	0,2 ppm de composé phosphonium P3	60	50
30	1,8 ppm de composé ammonium A16 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	60	3,3
35			

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	après un temps de contact de x minutes	
		x minutes	%
5			
10			
	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P3	60	0,079
15			
	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P21	60	0,045
20			
	1,8 ppm de composé ammonium A9 + 0,2 ppm de composé phosphonium P33	60	0,031

25

Ce tableau montre que seul un effet de synergie est obtenu lorsqu'on utilise en combinaison un composé d'ammonium de poids moléculaire supérieur à 1000 et un composé de phosphonium.

30

Exemple 26

Souche bactérienne : *Proteus vulgaris* (ATCC 13315)\*

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée  
5 sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

$1.10^6$  germes par ml

Vitesse de destruction des germes bactériens			
		% de bactéries restantes	
		après un temps de contact	
		de x minutes	
	x minutes		%
10			
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés		
20	2 ppm du composé ammonium A9	1	70
25	1,8 ppm du composé ammonium A9 + 0,2 ppm du composé phosphonium P36	1	4

30 \* (germes stressés, un seul repiquage)

Exemple 27

On a préparé dans de l'eau distillée une première composition A contenant 3,6 % en poids de composé ammonium A9 et 0,4 % en poids de composé phosphonium P3, et une deuxième composition B contenant 3,6 % en poids de composé ammonium A16 (poids moléculaire 1000) et 0,4 % en poids de composé phosphonium P3.

10

On a ajouté la composition A dans une première piscine et la composition B dans une deuxième piscine adjacente à la première. Chaque piscine contenait 800 litres d'eau de ville de 35°F de dureté et était munie d'un système de filtration continue sur sable (temps de séjour de l'eau dans la piscine = 95 minutes ; 66 % de l'eau envoyée au filtre est de l'eau débordant de la piscine), d'un système de régulation du pH à 7,6 et d'un système de régulation de la température à 28°C.

15

Dans chacune des piscines, on a maintenu une concentration de 2 ppm de composition désinfectante dans l'eau.

20

Les piscines étaient placées l'une à côté de l'autre dans un même bâtiment (même environnement de contamination) et ont été contaminées au moyen d'un litre d'une même suspension contenant  $27.10^7$  germes cibles et banaux par ml. Les germes banaux étaient des germes du type *Pseudomonas*, *Acinetobacter* et *Acetobacter*.

35

On a ainsi remarqué que les germes cibles et banaux étaient rapidement tués dans la piscine traitée par la composition A suivant l'invention, et que des germes banaux du genre *Pseudomonas*, *Staphylococcus*, ....

contaminaient de plus en plus la piscine traitée au moyen de la composition B.

Le tableau suivant reprend les résultats du  
5 traitement.

	Temps après addition de la composition désinfectante	germes restant dans la piscine en germes/ml	Composition A    Composition B
10			
15	5 minutes 300 minutes 24 heures	27.10 <sup>4</sup> 89 2	54.10 <sup>4</sup> 97.10 <sup>2</sup> 18.10 <sup>4</sup>

Des essais sur des souches de champignons que l'on retrouve aux abords des piscines telles que 20 Trichophyton rubrum ou Chrysosporium keratinophilum ont montré l'action fongicide en 24 heures de compositions suivant l'invention sous forme de solution aqueuse contenant moins de 50 ppm d'ammonium et de phosphonium et en présence de 30 ppm de Cu et 100 ppb de Ag.

25

L'invention a donc aussi pour objet une composition fongicide à usage externe par exemple pour le traitement de champignons se développant sur le corps humain ou sur le corps d'un animal, cette composition 30 contenant au moins un composé suivant l'invention et, de préférence, un agent favorisant la pénétration dudit composé. Un tel agent est par exemple de l'éthanol ou un autre alcool.

Dans le cas où la composition ou le procédé suivant l'invention sont appliqués à la désinfection d'eau, on utilise, de préférence, au moins une composition suivant l'invention, à raison de 0,5 à 1000 parties par million (ppm) du milieu aqueux à désinfecter. Quant aux ions des métaux, tels que le cuivre et l'argent, qui peuvent être produits au sein de ce milieu aqueux par électrolyse ou par addition à celui-ci de sels hydro-solubles de ces métaux, tels que sulfate, chlorure, nitrate, etc., ils sont utilisés, de préférence, à des concentrations de 0,5 à 5 ppm pour les ions de cuivre et de 1 à 50 ppb (parties par milliard), plus particulièrement de 1 à 10 ppb pour les ions d'argent.

Lorsqu'on doit désinfecter des surfaces, la composition suivant l'invention est projetée ou pulvérisée sur lesdites surfaces.

Il va de soi que, pour désinfecter des surfaces, il est également possible de tremper les surfaces à désinfecter dans un bain.

La composition suivant l'invention est également utile pour la conservation d'aliments ou de boissons puisqu'elle permet une destruction rapide des germes au moyen de très faibles quantités et qu'elle reste efficace pendant une longue période de temps.

La composition suivant l'invention peut, vu la faible quantité nécessaire pour obtenir la destruction rapide des germes, être utilisée dans la conservation de boissons, d'aliments, etc.

5

La composition suivant l'invention peut ainsi être ajoutée pendant l'étape de cuisson de confitures, peut être injectée dans des aliments. On peut également imprégner ou imbiber des aliments d'une composition suivant l'invention en trempant lesdits aliments dans un bain contenant ladite composition ou en pulvérissant sur lesdits aliments ladite composition.

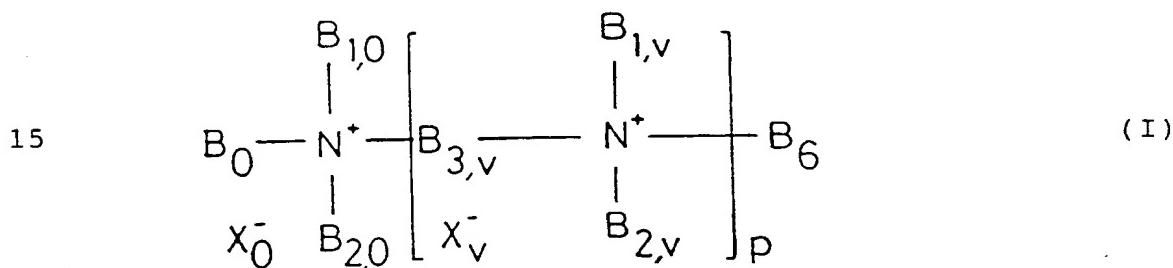
De façon avantageuse, la composition suivant l'invention peut être utilisée pour le dégraissage et la stérilisation de la laine.

La composition suivant l'invention peut être utilisée dans des savons, dentifrices, shampooings, pansements médicaux, pour la conservation d'aiguilles de seringues, de verres de contact, pour la stérilisation d'enzymes extraits de bactéries sans risque de dénaturation, pour la protection du bois, pour la conservation d'hydrocarbures, pétrole, papiers, cotons, pour la destruction de bactéries sulfato-réductrices, pour des traitements agricoles, antifongiques, etc.

REVENDICATIONS

1. Composition destinée à la désinfection de liquides et/ou de surfaces ou à la conservation d'aliments ou 5 boissons, cette composition contenant au moins un composé d'ammonium quaternaire et au moins un composé de phosphonium quaternaire, au moins un composé d'ammonium quaternaire étant un composé ayant un poids moléculaire compris entre 1000 et 50.000, de formule

10



20

dans laquelle :

- p est un nombre entier au moins égal à 1 ;
- 25 - v est un nombre entier compris entre 1 et p ;
- $B_0$  et  $B_6$  qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone ;

-  $B_{1,0}$ ,  $B_{2,0}$ ,  $B_{1,v}$  et  $B_{2,v}$  pour  $v$  compris entre 1 et  $p$  désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement carboxyle ou par un groupement hydroxyle,  $B_{1,0}$ ,  $B_{2,0}$ ,  $B_{1,v}$  et  $B_{2,v}$  pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone,  $B_{1,v}$  et/ou  $B_{2,v}$  pouvant être reliés respectivement à  $B_{1,v+1}$  et/ou

$B_{1,v-1}$  et à  $B_{2,v+1}$  et/ou  $B_{2,v-1}$  ;

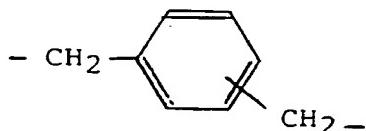
10

-  $B_{3,v}$  pour  $v$  compris entre 1 et  $p$  désigne un groupe hydrocarboné éventuellement substitué insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe biguanide ou un groupe de formule

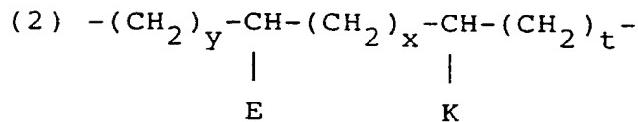
15

(1) o-, m- ou p-xylydène de formule :

20



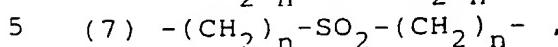
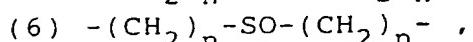
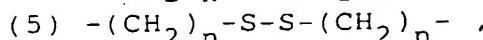
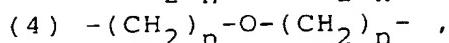
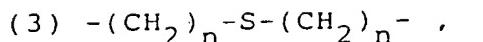
25



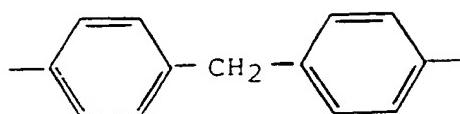
30

où  $x$ ,  $y$  et  $t$  sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de  $x + y + t$  est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de carbone ;

35



(8)

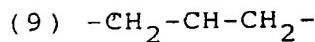


10

où n est égal à 1, 2 ou 3.

OH

15



et

20  $X_O^-$  et  $X_V^-$  désignent un anion, de préférence un atome d'halogène.

2. Composition suivant la revendication 1, caracté-

risée en ce que le composé d'ammonium quaternaire a un

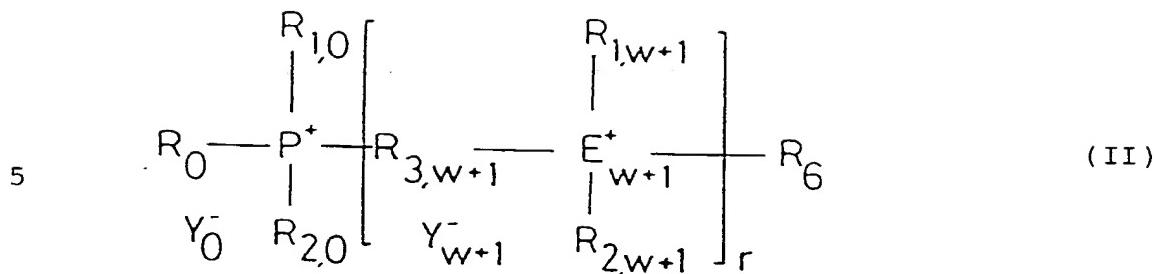
25 poids moléculaire compris entre 1000 et 5000.

3. Composition suivant la revendication 1 ou 2,

caractérisée en ce que le composé de phosphonium

quaternaire est un composé répondant à la formule

30 suivante :

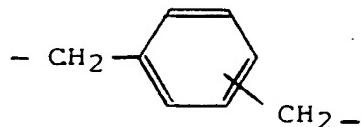


10 dans laquelle :

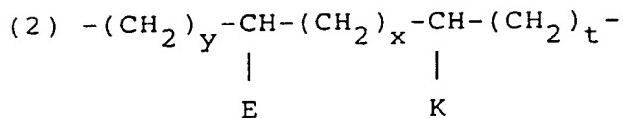
- r est un nombre entier éventuellement égal à 0 ;
- w est un nombre entier compris entre 0 et r ;
- R<sub>0</sub> et R<sub>6</sub> qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone ;
- R<sub>1,0</sub>, R<sub>2,0</sub>, R<sub>1,g+1</sub> et R<sub>2,g+1</sub> pour g compris entre 0 et r désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement hydroxyle, R<sub>1,g+1</sub> et R<sub>2,g+1</sub> pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone, R<sub>1,g+1</sub> et/ou R<sub>2,g+1</sub> pouvant être reliés respectivement à R<sub>1,g+2</sub> et/ou R<sub>1,g</sub> et à R<sub>2,g+2</sub> et/ou R<sub>2,g</sub> ;
- E<sub>w+1</sub> étant choisi pour w compris entre 0 et r parmi N et P.

-  $R_{3,w+1}$  désigne un groupe hydrocarboné éventuellement insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe de formule :

5 (1) o-, m- ou p-xylylidène de formule :



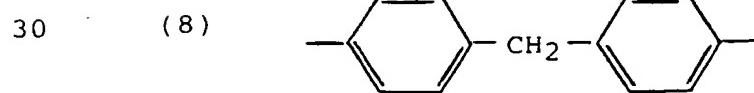
10



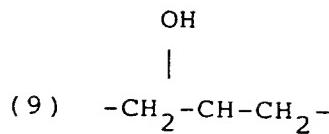
15

où x, y et t sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de x + y + t est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent de l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de carbone ;

- 20
- (3)  $-(CH_2)_n - S - (CH_2)_n -$ ,
  - (4)  $-(CH_2)_n - O - (CH_2)_n -$ ,
  - (5)  $-(CH_2)_n - S - S - (CH_2)_n -$ ,
  - (6)  $-(CH_2)_n - SO - (CH_2)_n -$ ,
  - (7)  $-(CH_2)_n - SO_2 - (CH_2)_n -$ ,



35 où n est égal à 1, 2 ou 3 ;



5 et

$\text{Y}_0^-$  et  $\text{Y}_w^-$  désignent un anion, de préférence un halogène.

10 4. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle contient également au moins un ion d'un métal choisi parmi le fer, le cuivre, l'argent, l'or, le manganèse, le zinc ou un mélange de tels ions.

15

5. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle contient de 5 à 95 % en poids de composé phosphonium par rapport à la quantité totale d'ammonium et de phosphonium que contient la composition.

20 6. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que l'anion est un atome de chlore ou de brome.

25

7. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que  $\text{R}_0$  et/ou  $\text{R}_6$  et/ou  $\text{B}_0$  et/ou  $\text{B}_6$  contiennent de 12 à 22 atomes de carbone, de préférence 16 atomes de carbone.

30

8. Composition suivant la revendication 3, caractérisée en ce que pour au moins un  $k$  compris entre 0 et  $r$ ,  $\text{R}_{1,k}$  et  $\text{R}_{1,k+1}$  sont reliés entre eux et/ou  $\text{R}_{2,k}$  et  $\text{R}_{2,k+1}$  sont reliés entre eux en formant de préférence un groupe identique à  $\text{R}_{3,k+1}$ .

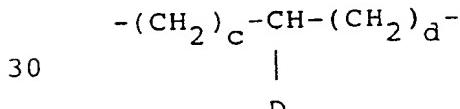
9. Composition suivant la revendication 1, caractérisée en ce que pour au moins un l compris entre 0 et p,  $B_{1,1}$  et  $B_{1,l+1}$  sont reliés entre eux et/ou  $B_{2,1}$  et  $B_{2,l+1}$  sont reliés entre eux en formant de préférence 5 un groupe identique à  $B_{3,l+1}$ .

10. Composition suivant la revendication 8 ou 9, caractérisée en ce que  $R_{1,k}$  et  $R_{1,k+1}$  et/ou  $R_{2,k}$  et  $R_{2,k+1}$  et/ou  $B_{1,1}$  et  $B_{1,l+1}$  et/ou  $B_{2,1}$  et  $B_{2,l+1}$  forment un groupe  $-(CH_2)_2^-$ . 10

11. Composition suivant la revendication 3, caractérisée en ce que  $R_{3,k+1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque k est un nombre pair, tandis que 15  $R_{3,k+1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque k est un nombre impair, ou inversément.

12. Composition suivant la revendication 1, caractérisée en ce que  $B_{3,1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque l est un nombre pair, tandis que 20  $B_{3,1}$  est un groupe de formule  $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$  lorsque l est un nombre impair, ou inversément.

25. 13. Composition suivant la revendication 1 ou 3, caractérisée en ce que  $R_{3,k+1}$  et  $B_{3,1}$  pour au moins un k ou l compris entre 0 et r ou 1 et p est un groupe de formule :



dans laquelle D désigne un atome d'hydrogène ou un radical  $C_{1-4}$  alkyle, c et d sont des nombres entiers inférieurs à 5 dont l'un peut avoir une valeur égale 35 à 0 tandis que la somme c + d est au moins égale à 1 et au maximum égale à 8.

14. Procédé de désinfection de liquides, caractérisé en ce qu'on ajoute à ces liquides au moins une composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes.

5

15. Procédé de désinfection de surfaces infectées, caractérisé en ce qu'on met ces surfaces en contact avec au moins une composition désinfectante suivant l'une quelconque des revendications 1 à 13.

10

16. Procédé de conservation de boissons dans lequel on ajoute auxdites boissons une composition suivant l'une quelconque des revendications 1 à 13.

15

17. Procédé de conservation d'aliments dans lequel on injecte dans lesdits aliments une composition suivant l'une quelconque des revendications 1 à 13.

20

18. Procédé de conservation d'aliments dans lequel on trempe lesdits aliments dans une composition suivant l'une quelconque des revendications 1 à 13.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/BF 90/00055

## I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER (If several classification symbols apply, indicate all) <sup>6</sup>

According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC  
 A01N 57/34, 57/36, C02F 1/50, // (A01N 57/34, 59:20, 59:16, 33:12)  
 Int.Cl.<sup>5</sup> (A01N 57/36, 59/20, 59:16, 33:12)

## II. FIELDS SEARCHED

### Minimum Documentation Searched <sup>7</sup>

Classification System	Classification Symbols
Int.Cl. <sup>5</sup>	A01N
<small>Documentation Searched other than Minimum Documentation to the Extent that such Documents are Included in the Fields Searched <sup>8</sup></small>	

## III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT<sup>9</sup>

Category <sup>10</sup>	Citation of Document, <sup>11</sup> with indication, where appropriate, of the relevant passages <sup>12</sup>	Relevant to Claim No. <sup>13</sup>
A	EP, A, 0258737 (HENKEL) 9 March 1988 see claims (cited in the application) --	1-18
A	US, A, 4835143 (D.K. DONOFRIO et al.) 30 May 1989 see claims --	1-18
A	WO, A, 87/02221 (FABRICOM AIR CONDITIONING) 23 April 1987 (cited in the application)	1-18
-----		

\* Special categories of cited documents: <sup>10</sup>

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

## IV. CERTIFICATION

Date of the Actual Completion of the International Search

10 December 1990 (10.12.90)

Date of Mailing of this International Search Report

22 January 1991 (22.01.91)

International Searching Authority

EUROPEAN PATENT OFFICE

Signature of Authorized Officer

**ANNEX TO THE INTERNATIONAL SEARCH REPORT  
ON INTERNATIONAL PATENT APPLICATION NO.**

BE 9000055  
SA 40482

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on 09/01/91. The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP-A- 0258737	09-03-88	DE-A-	3628801	03-03-88
		JP-A-	63060903	17-03-88
US-A- 4835143	30-05-89	None		
WO-A- 8702221	23-04-87	LU-A-	86123	02-06-87
		EP-A-	0250459	07-01-88
		JP-T-	63501793	21-07-88
		US-A-	4923619	08-05-90

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale N° PCT/BE 90/00055

## I. CLASSEMENT DE L'INVENTION (si plusieurs symboles de classification sont applicables, les indiquer tous) <sup>7</sup>

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

CIB<sup>5</sup>: A 01 N 57/34, 57/36, C 02 F 1/50, // (A 01 N 57/34, 59:20, 59:16, 33:12) (A 01 N 57/36, 59:20, 59:16, 33:12)

## II. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTÉ

Documentation minimale consultée <sup>8</sup>

Système de classification	Symbol de classification
CIB <sup>5</sup>	A 01 N
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où de tels documents font partie des domaines sur lesquels la recherche a porté <sup>9</sup>	

## III. DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS <sup>10</sup>

Catégorie <sup>11</sup>	Identification des documents cités, <sup>11</sup> avec indication, si nécessaire, des passages pertinents <sup>12</sup>	N° des revendications visées <sup>13</sup>
A	EP, A, 0258737 (HENKEL) 9 mars 1988 voir revendications cité dans la demande ---	1-18
A	US, A, 4835143 (D.K. DONOFRIO et al.) 30 mai 1989 voir revendications ---	1-18
A	WO, A, 87/02221 (FABRICOM AIR CONDITIONING) 23 avril 1987 cité dans la demande -----	1-18

### \* Catégories spéciales de documents cités: <sup>11</sup>

- « A » document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- « E » document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- « L » document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
- « O » document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- « P » document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

« T » document ultérieur publié postérieurement à la date de dépôt international ou à la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

« X » document particulièrement pertinent: l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive

« Y » document particulièrement pertinent: l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier.

« & » document qui fait partie de la même famille de brevets

## IV. CERTIFICATION

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

10 décembre 1990

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

22.01.91

Administration chargée de la recherche internationale

OFFICE EUROPEEN DES BREVETS

Signature de l'agent mandataire

Natalie Weinberg

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE  
RELATIF A LA DEMANDE INTERNATIONALE NO.**

BE 9000055  
SA 40482

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche internationale visé ci-dessus.  
Lesdits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du 09/01/91  
Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets.

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP-A- 0258737	09-03-88	DE-A- 3628801 JP-A- 63060903	03-03-88 17-03-88
US-A- 4835143	30-05-89	Aucun	
WO-A- 8702221	23-04-87	LU-A- 86123 EP-A- 0250459 JP-T- 63501793 US-A- 4923619	02-06-87 07-01-88 21-07-88 08-05-90